

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-154823

(43)Date of publication of application : 28.05.2002

(51)Int.Cl. C01G 23/00  
B01J 27/24  
B01J 35/02  
C01B 21/082  
C01G 9/00  
C01G 19/00  
C01G 41/00

(21)Application number : 2000-  
343655(71)Applicant : TOYOTA CENTRAL RES &  
DEV LAB INC

(22)Date of filing : 10.11.2000

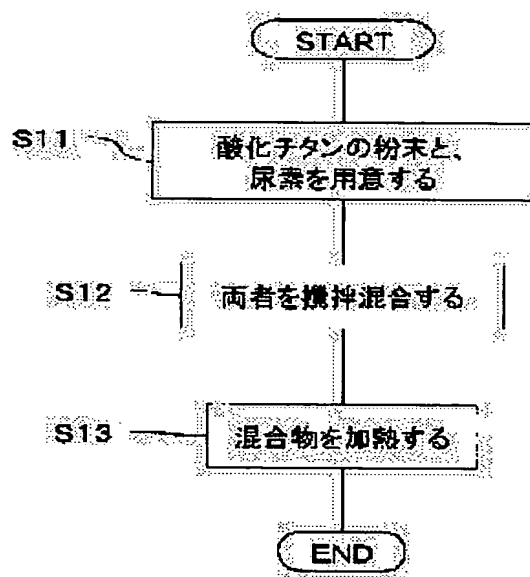
(72)Inventor : SUZUKI KENICHI  
MORIKAWA KENJI  
AOKI TSUNETAKE  
TAGA YASUNORI

## (54) MANUFACTURING METHOD OF INORGANIC OXYNITRIDE AND INORGANIC OXYNITRIDE

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To efficiently manufacture a powdery inorganic oxynitride functioning as a photocatalyst.

SOLUTION: The oxynitride is manufactured by mixing and stirring the powder of titanium oxide with urea and heating it (S11-S13).



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 01.10.2002

[Date of sending the examiner's decision  
of rejection]

54

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2002-154823  
(P2002-154823A)

(43) 公開日 平成14年5月28日 (2002.5.28)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード* (参考)
C 0 1 G 23/00		C 0 1 G 23/00	Z 4 G 0 4 7
B 0 1 J 27/24		B 0 1 J 27/24	A 4 G 0 4 8
35/02		35/02	J 4 G 0 6 9
C 0 1 B 21/082		C 0 1 B 21/082	D
C 0 1 G 9/00		C 0 1 G 9/00	B
審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 7 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2000-343655 (P2000-343655)

(22) 出願日 平成12年11月10日 (2000. 11. 10)

(71) 出願人 000003609  
株式会社豊田中央研究所  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1  
(72) 発明者 鈴木 憲一  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内  
(72) 発明者 森川 健志  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内  
(74) 代理人 100075258  
弁理士 吉田 研二 (外2名)

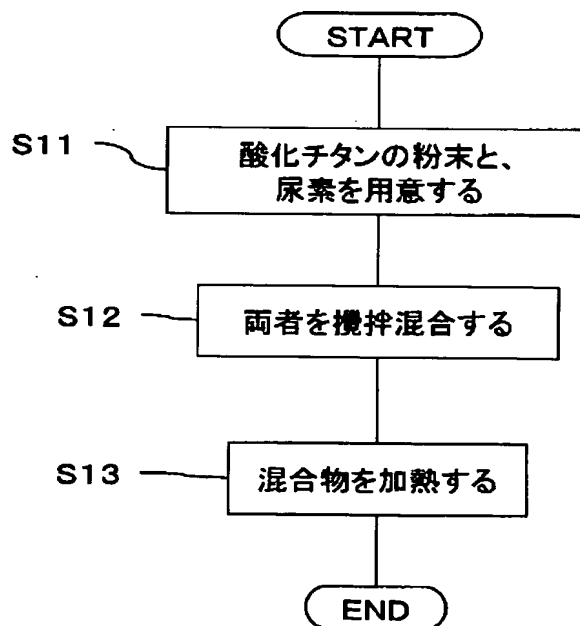
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 無機系酸窒化物の製造方法および無機系酸窒化物

(57) 【要約】

【課題】 光触媒として機能する粉末形状の無機系酸窒化物効率的に製造する。

【解決手段】 酸化チタンの粉末と尿素を攪拌混合した後、加熱して酸窒化チタンを製造する (S11~S13)。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 無機系酸窒化物の製造方法であって、比表面積が  $5\text{ m}^2/\text{g}$  以上の酸化物と、常温で前記酸化物に吸着する窒素化合物の混合物を加熱して光触媒活性を有する無機系酸窒化物を製造することを特徴とする無機系酸窒化物の製造方法。

【請求項 2】 請求項 1 に記載の方法において、前記酸化物は、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化スズ、酸化鉄、酸化タングステン、酸化ケイ素から選ばれた 1 以上の物質であることを特徴とする無機系酸窒化物の製造方法。

【請求項 3】 請求項 1 または 2 に記載の方法において、前記窒素化合物は、尿素であることを特徴とする無機系酸窒化物の製造方法。

【請求項 4】 請求項 1～3 のいずれか 1 つに記載の方法において、前記加熱は、アンモニアガス雰囲気において行われることを特徴とする無機系酸窒化物の製造方法。

【請求項 5】 比表面積が  $5\text{ m}^2/\text{g}$  以上の酸化物と、常温で液体もしくは固体の窒素化合物の混合物を加熱して製造された光触媒活性を有する粉末状の無機系酸窒化物であって、窒素原子による酸素原子の置換割合が 0.1～25%であることを特徴とする無機系酸窒化物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、無機系酸窒化物の製造方法および無機系酸窒化物、特に光触媒活性を有する無機系酸窒化物に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 従来より、光触媒として酸化チタン ( $\text{TiO}_2$ ) が広く利用されている。しかし、この酸化チタンは、紫外光において触媒活性を示すが、可視光においてはほとんど触媒活性を示さない。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】 一方、太陽光における紫外線領域の光は、数%程度であり、蛍光灯の光などは紫外線領域の光をほとんど含まない。従って、可視光においても光触媒活性を示す物質が望まれている。

【0004】 本出願人は、酸化チタンの酸素を部分的に窒素と置換した酸窒化チタン ( $\text{Ti-O-N}$ ) が、可視光においても良好な光触媒活性を示すことを発見した。この酸窒化チタンは、酸化チタンなどのチタン化合物をターゲットとして窒素雰囲気ですパッタリングすることにより薄膜として形成することができる。これについては、特願平 11-223003 号において提案した。また、特願 2000-19315 号において、酸窒化物の製造方法について各種の提案をした。

【0005】 また、光触媒物質としては、粉末形状のものなどが利用しやすい。すなわち、粉末形状であれば、

接着剤などと一緒に必要な場所に塗布するなどの方法で、所望の場所に容易に光触媒の膜を形成することができる。そこで、粉末状の酸窒化物を効率的に製造することが望まれている。

【0006】 本発明は、光触媒として機能する粉末形状の無機系酸窒化物を効率的に製造する方法および製造された無機系酸窒化物に関する。

【0007】 なお、特開 2000-86210 号公報には、ホウ酸と尿素の混合物を加熱して窒化ホウ素を得る方法が示されており、また特開 2000-144394 号公報には、ホウ酸と酸化チタンと尿素の混合物から熱処理で窒化チタンを得ることが示されているが、これらは条件および結果生成物の両方が本発明と異なるものである。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】 本発明は、無機系酸窒化物の製造方法であって、比表面積が  $5\text{ m}^2/\text{g}$  以上の酸化物と、常温で酸化物に吸着する窒素化合物の混合物を加熱して光触媒活性を有する無機系酸窒化物を製造することを特徴とする。

【0009】 このように、窒素供給源として、酸化物に常温で吸着する窒素化合物を使用し、これらの混合物を加熱することによって、原料酸化物内へ窒素を侵入させることができる。これによって、酸化物の酸素の一部が窒素に置換され酸窒化物が生成される。すなわち、酸窒化物の形成が比較的低温（例えば、 $150^\circ\text{C}\sim 600^\circ\text{C}$  程度）で、かつ短時間の加熱で達成できる。また、原料酸化物結晶の表面に窒素化合物の吸着され、原料酸化物結晶の表面が窒素化合物で覆われる。この結果、加熱処理によって形成される酸窒化物の結晶の粗大化が抑制され、原料酸化物とほぼ同じ比表面積を有する酸窒化物が得られる。これにより、生成された酸窒化物において、原料酸化物と同様の紫外光触媒活性が得られるとともに、可視光においても高い光触媒活性を得ることができる。

【0010】 また、前記酸化物は、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化スズ、酸化鉄、酸化タングステン、酸化ケイ素から選ばれた 1 以上の物質であることが好適である。これらの物質は、元々紫外線照射下において光触媒機能を有しており、窒素を導入することで、可視光による光触媒機能を発揮するようになる。

【0011】 また、前記窒素化合物は、各種アミノ化合物、アミド等が使用できるが、尿素であることが好適である。尿素は、酸化物の表面に吸着されやすく、また加熱することによって窒素が酸化物中に効果的に侵入する。

【0012】 なお、窒素化合物としては、上述の尿素の他、チオ尿素、二酸化チオ尿素、1, 1-ジメチル尿素、シアヌル酸など還元力を有するもの（特に、尿素類似化合物）が利用可能である。これは、炭酸アンモニウ

ムのように還元力のないものであると、酸化物と反応せず、酸化物中に窒素が侵入しないからである。

【0013】また、前記加熱は、アンモニアガス雰囲気において行われることが好適である。アンモニアガスからの窒素が酸化物中に侵入し、さらに窒素含有量の多い酸窒化物を形成することができる。

【0014】本発明に係る無機系酸窒化物は、比表面積が $5\text{ m}^2/\text{g}$ 以上の酸化物と、常温で液体もしくは固体の窒素化合物の混合物を加熱して製造された光触媒活性を有する粉末状の無機系酸窒化物であって、窒素原子による酸素原子の置換割合が、 $0.1 \sim 25\%$ であることを特徴とする。窒素含有量が多いため、可視光において十分な光触媒活性を得ることができる。例えば、酸窒化チタンであれば、 $\text{TiO}_{1.998}\text{N}_{0.002} \sim \text{Ti}_{1.5}\text{N}_{0.5}$ の範囲である。

【0015】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施形態について、図面に基づいて説明する。

【0016】本実施形態の処理について図1に基づいて説明する。まず、粉末状の酸化チタンと、尿素を用意する(S11)。酸化チタンは、比表面積が $5\text{ m}^2/\text{g}$ 以上のものとし、好ましくは $300\text{ m}^2/\text{g}$ 以上のものとする。このような粉末状の酸化チタンは市販されているので、それを利用すればよい。ただし、粉末粒子の大きさが上述のようなものであれば問題はないため、市販されているものでなくてもよい。なお、表面積の小さなものは、その分だけ触媒としての能力が劣ってしまうため、好ましくない。さらに、尿素からの窒素の侵入も十分なものにできない。

【0017】また、尿素は試薬として市販されている粉末状のものを利用すればよい。

【0018】次に、粉末状の酸化チタンと尿素を混合する(S12)。尿素は、常温で酸化チタンの表面に吸着される。そこで、両者を攪拌混合することで、尿素が酸化チタンの表面に付着する。量的には、両者をほぼ同重量ずつ混合すればよく、これによって十分な尿素を酸化チタンの表面全体に吸着させることができる。なお、尿素などの窒素化合物の水溶液を作り、これを酸化チタン粉末の表面に付着させてもよい。

【0019】このようにして、酸化チタンと尿素が攪拌混合され、酸化チタン粉末の表面に尿素が吸着された場合には、その混合物を加熱する。温度は $500^\circ\text{C}$ 程度、時間は30分程度が好適であり、さらに加熱中も攪拌を継続することが好ましい。このような加熱処理によって、酸化チタンの内部に窒素が侵入し、酸窒化チタンが生成される。

【0020】特に、加熱前から尿素が酸化チタンの表面に吸着されており、窒素の侵入が非常に容易に行われる。そこで、 $600^\circ\text{C}$ 未満という低温でかつ短時間での酸窒化チタンの生成が可能になる。

【0021】そして、このような $600^\circ\text{C}$ 未満での短時間の加熱により、酸窒化チタンの結晶の粗大化が抑制され、原料の酸化チタンと同じ比表面積を有する酸窒化チタンが得られる。特に、酸化チタンの表面に尿素が吸着されており、酸化チタンの粉末粒子同士が直接接触していない。そこで、加熱されたときに、粉末粒子同士が合体して結晶化が進むのが防止され、粒子の粗大化が抑制される。

【0022】このようにして、尿素からの窒素が導入された酸窒化チタンの粉末が生成される。この粉末の粒子径は、基本的に原料の酸化チタンと同一であり、従って酸化チタンと同様の紫外光における光触媒を維持することができる。そして、窒素が導入されて得られた酸窒化チタンは、紫外光だけでなく可視光において触媒活性を有する。そこで、屋外、屋内における防曇、防汚材として広く利用できる。特に接着剤などのバインダを利用して所望の表面に塗布することができ、広範囲な利用が期待できる。

【0023】なお、酸窒化チタンの窒素は、酸素との置換により、Ti原子とN原子との間の化学結合が存在する状態で導入されている。

【0024】ここで、使用する酸化物は、比表面積が $5\text{ m}^2/\text{g}$ 以上を有する酸化物であればいかなるものでもよいが、光触媒などに使用できる、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化錫、酸化鉄、酸化タングステン、酸化ケイ素の中から選ばれた1種または2種以上が好適である。酸化物の表面積が上記値を下回る場合、窒素化合物の吸着量が不足して酸窒化物の形成に支障をきたし、結晶粒子の粗大化を抑制できる温度範囲の加熱では酸窒化物が形成できなくなる。

【0025】また、酸化物の形態は、湿式法あるいは乾式法で製造される粉末や膜、あるいは内部に微細孔を有するメソポア多孔質材料などいかなるものでもよい。さらに、本発明でいう酸化物とは、非酸化性雰囲気中での加熱によって酸化物になるものを含み、含水酸化物、水酸化物であってもよい。

【0026】また、酸化物の比表面積は、 $5\text{ m}^2/\text{g}$ 以上であることが好適である。これは、この程度の比表面積がないと、窒素の侵入を十分なものとできず、また生成された酸窒化物が触媒活性を十分発揮することができないからである。

【0027】酸化物の比表面積がこの値を下回ると、窒素化合物の吸着量が不足して、酸窒化物の形成に支障をきたし、また結晶粒子の粗大化を抑制できる温度範囲での加熱では酸窒化物の形成が困難になるからである。

【0028】また、尿素に代えて他の窒素化合物、例えばチオ尿素、二酸化尿素、1,1-ジメチル尿素、シアヌル酸など各種のアミノ化合物やアミド等の還元力のある窒素化合物を利用することもできる。なお、限定されるわけではないが、窒素化合物は常温で液体もしくは固

体のものが好ましい。これは、アンモニアやヒドラジン等常温で気体のものは酸化物の表面への吸着が効果的に行えないからである。

【0029】また、窒素化合物と酸化物の混合には、任意の混合方法が選択できる。例えば、粉末同士であれば、上述のように、そのまま両者を混合すればよい。また、窒素化合物を適当な溶媒に溶解してから酸化物粉末と混合してもよい。さらに、酸化物が基体上の膜である場合には、窒素化合物溶液をスプレーなどで塗布してもよい。

【0030】さらに、加熱処理時の雰囲気は、大気中でもよいが、酸窒化物の再酸化を防止するために、窒素ガス、アルゴンガスなどの不活性ガス雰囲気あるいは、水素ガス、アンモニアガス、ヒドラジンガスなど従来公知の還元性ガス雰囲気が好ましい。特に、アンモニアガス雰囲気では、酸窒化物の酸化防止されるとともに、雰囲気ガスからも窒素が供給され、酸窒化物の生成効率が高まるため、特に好ましい。ここで、加熱中は原料の酸化物が還元力のある窒素化合物に均一に曝されるのが好ましく、原料酸化物が粉末の場合は、加熱炉は流動層炉やロータリーキルンなどの連続攪拌機構を持つものが好ましい。しかし、連続攪拌機構を持たない炉であっても、原料の酸化物と窒素化合物の混合物を、一度大気中で150℃程度まで加熱し、攪拌具を使って原料をよく混ぜ合わせ、その後所望の温度および雰囲気ガス中で加熱すれば、最初から流動層炉などを用いた場合と同様の酸窒化反応を行わせることができる。

【0031】加熱処理は、上記のように既成の酸化物と窒素化合物との混合物を加熱するのが簡便であるが、原料の酸化物の製造段階における加熱工程を利用してよい。例えば、酸化チタンの粉末を得る一般的な製造方法では、四塩化チタンや硫化チタンなどのチタン塩水溶液を加熱あるいはアルカリを添加して加水分解させて酸化チタンの微結晶を沈殿させた後、ろ過、洗浄を経て加熱乾燥される。さらに、場合によっては、この微結晶をオートクレーブ中で100℃以上の温度で水熱処理して所望の結晶体にまで成長させる。

【0032】よって、この酸化物製造の加熱工程を本発明の加熱工程と兼ねてもよい。すなわち、酸化物粉末の乾燥やオートクレーブ処理などの加熱工程に入る前に尿

【0033】また、本発明の酸窒化物粉末を光触媒などに利用する場合には、酸窒化物粉末を水や有機溶媒に分散させてゾルあるいはスラリーとし、これをコーティング液として基体に塗布した後、加熱して酸窒化物粉末を膜状に基体に密着させるのが一般的である。そこで、この密着加熱工程を本発明の酸窒化物製造の加熱工程と兼ねてもよい。すなわち、原料の酸化物粉末と尿素などの還元力のある窒素化合物との混合物をゾルあるいはスラリーとして基体に塗布した後に加熱を行い、酸窒化物の製造とコーティング膜化を同時に行ってもよい。この方法では、酸窒化物の種類および基体の種類によって加熱温度やガス雰囲気を従来条件から適宜変更する必要があるが、低コストの酸窒化物コーティング液が得られるという利点がある。また、処理が全体として簡略化されるため、コーティングが低コストで行える。

【0034】このように、窒素供給源として、酸化物に常温で吸着する尿素などの窒素化合物を使用し、これらの混合物を加熱することによって、原料酸化物内へ窒素を侵入させ酸素原子を窒素原子に置換させることができる。すなわち、酸窒化物の形成が600℃未満の低温で、かつ短時間の加熱で達成できる。また、原料酸化物結晶の表面に窒素化合物が吸着され、原料酸化物結晶の表面が窒素化合物で覆われる。この結果、加熱処理によって形成される酸窒化物の結晶の粗大化が抑制され、原料酸化物とほぼ同じ比表面積を有する酸窒化物が得られる。これにより、生成された酸窒化物において、原料酸化物と同様の紫外光触媒活性が得られるとともに、可視光においても高い光触媒活性を得ることができる。

【0035】

【実施例】「実施例1」酸化物として、比表面積が1～320m<sup>2</sup>/gのアナターゼ型酸化チタン粉末を5種類用意した。酸化チタン粉末を50gずつガラスビーカに入れ、さらに試薬の二酸化チオ尿素粉末を25g添加した。そして、両者をへらで、十分攪拌混合した。このとき、混合物は、純白色を呈していた。

【0036】ここで、酸化チタン粉末の比表面積は、サンプル1が320m<sup>2</sup>/g、サンプル2が90m<sup>2</sup>/g、サンプル3が7m<sup>2</sup>/g、サンプル4が4m<sup>2</sup>/g、サンプル5が1m<sup>2</sup>/gである。

【0037】次に、大気開放下で、ガラスビーカをマントルヒータにより加熱し、混合物の温度が200℃に達するまでへらでかき混ぜながら混合物の色調変化を目視観察した。その結果を表1に示す。

【0038】

【表1】

10

20

30

40

サンプルNo.	酸化物比表面積	色調変化
実施例	1	320m <sup>2</sup> /g
	2	90m <sup>2</sup> /g
	3	7m <sup>2</sup> /g
比較例	4	4m <sup>2</sup> /g
	5	1m <sup>2</sup> /g

表1より、比較例である比表面積が5m<sup>2</sup>/gを下回るサンプル4および5では、昇温途中において二酸化チオ尿素の分解ガスであるイオウ臭は強く感じられたものの、混合物の温度が200℃に到達しても、何ら色調変化は観察されなかった。

【0039】これに対し、実施例である比表面積が5m<sup>2</sup>/g以上であるサンプル1、2および3では、150℃以上において、混合物の色調が黄色に変化し、酸化チタンに窒素が導入されて酸化窒化チタンが生成されることが確認された。

【0040】また、得られた酸化窒化チタンの窒素原子に\*

\*よる酸素原子の置換割合をX線光電子分光分析で調べたところ、実施例では、0.2%以上という値を示した。また、比較例では0.1%以下であった。

【0041】「実施例2」表2に示すように、酸化物として、実施例1のサンプル1で使用したのと同じ比表面積が320m<sup>2</sup>/gのアナターゼ型酸化チタン粉末を用意した。比較例であるサンプル10～12ではこれをそのまま使用した。また、実施例であるサンプル6～9では、尿素試薬を等量混合した。

【0042】

【表2】

サンプルNo.	原料粉末	加熱条件	粉末の色調	結晶粒子径	窒素原子による酸素原子の置換比率	紫外光線*1 1時間照射後の残 留濃度*3	可視光線*2 7時間照射後の残 留濃度*3
実施例	6	酸化チタン+ 尿素等量混合	窒素ガス中、 250℃、30分	黄色	7nm	0.3%	2ppm
	7	酸化チタン+ 尿素等量混合	窒素ガス中、 350℃、30分	黄色 ～橙色	7nm	7.8%	2ppm
	8	酸化チタン+ 尿素等量混合	アンモニアガス中、 350℃、30分	黄色 ～橙色	7nm	8.7%	2ppm
	9	酸化チタン+ 尿素等量混合	アンモニアガス中、 450℃、30分	橙色	7nm	10.5%	2ppm
比較例	10	酸化チタン のみ	なし	白色	7nm	なし	2ppm
	11	酸化チタン のみ	アンモニアガス中、 450℃、30分	薄い黄色	12nm	0.06%	5ppm
	12	酸化チタン のみ	アンモニアガス中、 600℃、3時間	黄色	20nm	0.09%	8ppm

\*1: 10Wブラックライト

\*2: 10W白色蛍光灯+紫外線カットフィルタ

\*3: 初期濃度50ppm

尿素を混合した実施例であるサンプル6～9については、大気中で150℃まで加熱してよく攪拌し、ついで炉中に静置して、サンプル6は窒素ガス中で250℃：30分、サンプル7は窒素ガス中で350℃：30分、サンプル8はアンモニアガス中350℃：30分、サンプル9はアンモニアガス中450℃：30分加熱した。

【0043】一方、尿素を混合しない比較例であるサン

プル10～12については、サンプル10は加熱なし、サンプル11はアンモニアガス中で450℃：30分、サンプル12は、アンモニアガス中600℃：3時間加熱した。

【0044】そして、各サンプル6～9、11、12を表2に示す条件で加熱処理した。その結果、粉末の色調は、白色から、薄い黄色～橙色に変化した。サンプル1

0は、酸化チタンの原料粉末のまま加熱しないものであり、色調は白色のままであった。

【0045】加熱処理の後、尿素を混合して加熱したサンプル6～9については、脱イオン水で洗浄し、酸化窒化物以外の残留物を除去して乾燥した。

【0046】各サンプルについて、X線回折法により結晶形の調査を行った結果、いずれの加熱サンプルもサンプル10の原料酸化チタンと同じアナターゼ型酸化チタンの結晶形を維持していた。その平均結晶粒径は、実施例であるサンプル6～9では、原料酸化チタン（サンプル10）と同じ7nmであった。これに対し、比較例であるサンプル11では、12nm、サンプル12では20nmと結晶成長を起こしていた。

【0047】また、X線光電子分光法により原料酸化チタンの酸素原子の窒素原子による置換割合を測定した結果、表2に示すように、サンプル6～9における窒素原子による酸素原子の置換割合は、それぞれ、サンプル6：0.3%、サンプル7：7.8%、サンプル8：8.7%、サンプル9：10.5%であった。一方、比較例であるサンプル11、12では、それぞれ0.06%、0.09%であった。このように、実施例の酸化窒化物では、比較例より低温の加熱条件でも高い置換割合を示した。

【0048】次に、各サンプルについて、紫外光線および可視光線の照射下での光触媒活性の測定を行った。この測定は、定法に従い、アセトアルデヒドガスの光分解能を測定した。すなわち、アセトアルデヒドの初期濃度を50ppmとし、10Wのブラックライトを1時間照射後のアセトアルデヒドの残留濃度を測定することで紫外光線による光触媒活性を測定した。また、紫外線カットフィルタ付10W白色蛍光灯を7時間照射後のアセトアルデヒドの残留濃度により、可視光線による光触媒活性を測定した。

【0049】その結果を表2に示す。

【0050】これより、実施例であるサンプル6～9および比較例であるサンプル10では、紫外光線照射により残留アルデヒド濃度は2ppmとなった。これより、600℃以下の加熱により、結晶粒子が粗大化することなく、酸化窒化物が形成された結果、紫外光線照射下での光触媒作用が原料粉末であるサンプル10（比較例）と同等に維持されることが確認された。一方、サンプル11および12では、残留アルデヒド濃度がそれぞれ5p

pm、8ppmであり、紫外光線活性が損なわれていることがわかる。これは、酸化チタンが粗大化したためである。

【0051】また、7時間の可視光照射後の残留アルデヒド濃度は、サンプル6で20ppm、サンプル7で15ppm、サンプル8で12ppm、サンプル9で8ppmとなった。これより、粗大化が起こらない範囲では、加熱温度は高い方がよく、また窒素中よりはアンモニア中が好ましいことがわかった。

【0052】これは、大気中では酸化窒化物の再酸化が進むが、窒素ガス雰囲気中ではこれが防止されること、およびアンモニア雰囲気においてはアンモニアからの窒素が酸化チタン中に侵入するためと考えられる。

【0053】また、サンプル12（比較例）では、色調は、黄色で酸化窒化物が形成されているものの、結集粒子の粗大化が起こっており、可視光活性が認められる反面、紫外光活性が損なわれていた。

【0054】なお、実施例である上述のサンプル6～9の酸化窒化物について分析したところ、表2に示すように、窒素原子による酸素原子の置換割合で0.3%以上の窒素が含まれていた。一方、比較例であるサンプル11、12では、窒素含有率は0.1%以下である。このように、本発明により、従来に比べ、酸化チタンへの窒素の導入を効率的なものとして、窒素含有率の大きな酸化窒化物を得ることができる。

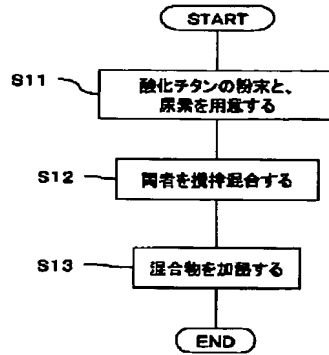
【0055】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、窒素供給源として、酸化チタンに常温で吸着する窒素化合物を使用し、これらの混合物を加熱することによって、原料酸化チタン内へ窒素を侵入させることができる。すなわち、酸化窒化物の形成が比較的低温で、かつ短時間の加熱で達成できる。また、原料酸化チタン結晶の表面に窒素化合物が吸着され、原料酸化チタン結晶の表面が窒素化合物で覆われる。この結果、加熱処理によって形成される酸化窒化物の結晶の粗大化が抑制され、原料酸化チタンとほぼ同じ比表面積を有する酸化窒化物が得られる。これにより、生成された酸化窒化物において、原料酸化チタンと同様の紫外光触媒活性が得られるとともに、可視光においても高い光触媒活性を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 実施形態の処理を示すフローチャートである。

【図 1】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード (参考)
C 0 1 G 19/00		C 0 1 G 19/00	Z
41/00		41/00	Z

(72) 発明者 青木 恒勇  
 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
 地の1 株式会社豊田中央研究所内

(72) 発明者 多賀 康訓  
 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
 地の1 株式会社豊田中央研究所内

F ターム (参考) 4G047 CA01 CB04 CC03 CD03  
 4G048 AA01 AB01 AD03 AE05 AE07  
 4G069 AA02 AA08 BA02A BA04A  
 BA04B BA21C BA48A BB04A  
 BB04B BB20A BB20B BC22A  
 BC35A BC50A BC60A BC66A  
 BD05A BE19C CA17 DA06  
 FA01 FC03